

**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

<b>(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> :</b> <b>B01J 19/18</b>	<b>A1</b>	<b>(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/00280</b> <b>(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:</b> 6. Januar 2000 (06.01.00)
<b>(21) Internationales Aktenzeichen:</b> PCT/EP99/04370 <b>(22) Internationales Anmeldedatum:</b> 23. Juni 1999 (23.06.99)  <b>(30) Prioritätsdaten:</b> 198 28 742.9      27. Juni 1998 (27.06.98)      DE  <b>(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US):</b> BASF COATINGS AG [DE/DE]; Glasuritstrasse 1, D-48165 Münster (DE).  <b>(72) Erfinder; und</b> <b>(75) Erfinder/Anmelder (nur für US):</b> MORITZ, Hans-Ulrich [DE/DE]; Am Immenhof 4, D-21227 Bendesdorf (DE). KOSSAK, Sabine [DE/DE]; Biedermannplatz 21, D-22083 Hamburg (DE). LANGENBUCH, Jessica [DE/DE]; Blumenstrasse 10, D-22885 Barsbüttel (DE). RINK, Heinz-Peter [DE/DE]; Lohofenerweg 44, D-48153 Münster (DE). JUNG, Werner, Alfons [DE/DE]; Uhrwerk-erstrasse 35, D-59387 Ascheberg (DE).  <b>(74) Anwalt:</b> FITZNER, Uwe; Lintorfer Strasse 10, D-40878 Ratingen (DE).	<b>(81) Bestimmungsstaaten:</b> BR, JP, MX, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  <b>Veröffentlicht</b> <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	
<b>(54) Title:</b> TAYLOR REACTOR FOR MATERIALS CONVERSION IN THE COURSE OF WHICH A CHANGE IN VISCOSITY $\nu$ OF THE REACTION MEDIUM OCCURS  <b>(54) Bezeichnung:</b> TAYLORREAKTOR FÜR STOFFUMWANDLUNGEN, BEI DEREN VERLAUF EINE ÄNDERUNG DER VISKOSITÄT $\nu$ DES REAKTIONSMEDIUMS EINTRITT  <b>(57) Abstract</b> <p>The invention relates to a Taylor reactor for materials conversion, comprising an outer reactor wall (1) and a rotor (2) concentrically or eccentrically arranged therein, a reactor bottom (3), a reactor lid (4) defining together the annular gap-shaped reactor volume (5), at least one device (6) for dosing educts, in addition to a device (7) for product evacuation, wherein a change in viscosity <math>\nu</math> of the reaction medium occurs during materials conversion and the reactor wall (1) and/or rotor (2) are geometrically embodied in such a way that conditions for Taylor vortex flow are fulfilled in the reactor volume substantially in the entire reactor facility.</p> <b>(57) Zusammenfassung</b> <p>Taylorreaktor zur Durchführung von Stoffumwandlungen mit einer äußeren Reaktorwand (1) und einem hierin befindlichen konzentrisch oder exzentrisch angeordneten Rotor (2), einem Reaktorboden (3) und einem Reaktordeckel (4), welche zusammen das ringspaltförmige Reaktorvolumen (5) definieren, mindestens einer Vorrichtung (6) zur Zudosierung von Edukten sowie einer Vorrichtung (7) für den Produktablauf, wobei bei der Stoffumwandlung eine Änderung der Viskosität <math>\nu</math> des Reaktionsmediums eintritt und die Reaktorwand (1) und/oder der Rotor (2) geometrisch derart gestaltet ist oder sind, daß auf im wesentlichen der gesamten Reaktorlänge im Reaktorvolumen (5) die Bedingungen für die Taylor-Wirbelströmung erfüllt sind.</p>		

# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

**Taylorreaktor für Stoffumwandlungen, bei deren Verlauf eine Änderung der Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums eintritt**

- 5 Die vorliegende Erfindung betrifft einen neuen Taylorreaktor für physikalische und/oder chemische Stoffumwandlungen, in deren Verlauf eine Änderung der Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums eintritt. Außerdem betrifft die vorliegende Erfindung ein neues Verfahren zur Stoffumwandlung, welche von einer Viskositätsänderung des Reaktionsmediums begleitet ist, unter den Bedingungen  
10 der Taylor-Wirbelströmung. Des weiteren betrifft die Erfindung Stoffe, welche mit Hilfe des neuen Verfahrens in dem neuen Taylorreaktor hergestellt worden sind, sowie deren Verwendung.

- Taylorreaktoren, die der Umwandlung von Stoffen unter den Bedingungen der  
15 Taylor-Wirbelströmung dienen, sind bekannt. Sie bestehen in wesentlichen aus zwei koaxialen konzentrisch angeordneten Zylindern, von denen der äußere feststehend ist und der innere rotiert. Als Reaktionsraum dient das Volumen, das durch den Spalt der Zylinder gebildet wird. Mit zunehmender Winkelgeschwindigkeit  $\omega_i$  des Innenzylinders treten einer Reihe unterschiedlicher  
20 Strömungsformen auf, die durch eine dimensionslose Kennzahl, die sogenannte Taylor-Zahl  $Ta$ , charakterisiert sind. Die Taylor-Zahl ist zusätzlich zur Winkelgeschwindigkeit des Rührers auch noch abhängig von der kinematischen Viskosität  $\nu$  des Fluids im Spalt und von den geometrischen Parametern, dem äußeren Radius des Innenzylinders  $r_i$ , dem inneren Radius des Außenzylinders  $r_a$   
25 und der Spaltbreite  $d$ , der Differenz beider Radien, gemäß der folgenden Formel:

$$Ta = \omega_i r_i d \nu^{-1} (d/r_i)^{1/2} \quad (I)$$

mit  $d = r_a - r_i$ .

- 30 Bei niedriger Winkelgeschwindigkeit bildet sich die laminare Couette-Strömung, eine einfache Scherströmung, aus. Wird die Rotationsgeschwindigkeit des Innenzylinders weiter erhöht, treten oberhalb eines kritischen Werts abwechselnd

entgegengesetzt rotierende (kontrarotierende) Wirbel mit Achsen längs der Umfangsrichtung auf. Diese sogenannten Taylor-Wirbel sind rotationssymmetrisch, besitzen die geometrische form eines Torus (Taylor-Wirbelringe) und haben einen Durchmesser, der annähernd so groß ist wie die Spaltbreite. Zwei benachbarte Wirbel bilden ein Wirbelpaar oder eine Wirbelzelle.

Dieses Verhalten beruht darauf, daß bei der Rotation des Innenzylinders mit ruhendem Außenzylinder die Fluidpartikel nahe des Innenzylinders einer stärkeren Zentrifugalkraft ausgesetzt sind als diejenigen, die weiter vom inneren Zylinder entfernt sind. Dieser Unterschied der wirkenden Zentrifugalkräfte drängt die Fluidpartikel vom Innen- zum Außenzylinder. Der Zentrifugalkraft wirkt die Viskositätskraft entgegen, da bei der Bewegung der Fluidpartikel die Reibung überwunden werden muß. Nimmt die Rotationsgeschwindigkeit zu, dann nimmt auch die Zentrifugalkraft zu. Die Taylor-Wirbel entstehen, wenn die Zentrifugalkraft größer als die stabilisierende Viskositätskraft wird.

Wird der Taylorreaktor mit einem Zu- und Ablauf versehen und kontinuierlich betrieben, resultiert eine Taylor-Wirbelströmung mit einem geringen axialen Strom. Dabei wandert jedes Wirbelpaar durch den Spalt, wobei nur ein geringer Stoffaustausch zwischen benachbarten Wirbelpaaren auftritt. Die Vermischung innerhalb solcher Wirbelpaare ist sehr hoch, wogegen die axiale Vermischung über die Paargrenzen hinaus nur sehr gering ist. Ein Wirbelpaar kann daher als gut durchmischter Rührkessel betrachtet werden. Das Strömungssystem verhält sich somit wie ein ideales Strömungsrohr, indem die Wirbelpaare mit konstanter Verweilzeit wie ideale Rührkessel durch den Spalt wandern.

Die bislang bekannten Taylorreaktoren können für die Emulsionspolymerisation verwendet werden. Hierzu sei beispielhaft auf die Patentschriften DE-B-1 071 241 und EP-A-0 498 583 oder auf den Artikel von K. Kataoka in Chemical Engineering Science, Band 50, Heft 9, 1995, Seiten 1409 bis 1416, verwiesen.

Sie kommen auch für elektrochemische Prozesse in Betracht, wobei die Zylinder als Elektroden fungieren. Hierzu sei auf die Artikel von S. Cohen und D. M. Maron in Chemical Engineering Journal, Band 27, Heft 2, 1983, Seiten 87 bis 97, sowie von Couret und Legrand in Electrochimia Acta, Band 26, Heft 7, 1981,  
5   Seiten 865 bis 872, und Band 28, Heft 5, 1983, Seiten 611 bis 617, verwiesen.

Es ist auch bekannt, die Taylorreaktoren als photochemische Reaktoren, bei denen sich die Lichtquelle im Innenzylinder befindet, zu verwenden (vgl. hierzu die Artikel von Szechowski in Chemical Engineering Science, Band 50, Heft 20,  
10   1995, Seiten 3163 bis 3173, von Haim und Pismen in Chemical Engineering Science, Band 49, Heft 8, Seiten 1119 bis 1129, und von Karpel Vel Leitner in Water Science and Technology, Band 35, Heft 4, 1997, Seiten 215 bis 222).

Auch ihre Verwendung als Bioreaktoren (vgl. hierzu den Artikel von Huang und  
15   Liu in Water Science and Technology, Band 28, Heft 7, 1994, Seiten 153 bis 158) oder als Flockungsreaktoren zur Abwässerreinigung (vgl. hierzu den Artikel von Grohmann in BMFT-FB-T 85-070, 1985) ist beschrieben worden.

Bei all diesen bekannten Stoffumwandlungen in Taylorreaktoren ändert sich die  
20   Viskosität  $\nu$  des Fluids gar nicht oder nur unwesentlich. Dadurch bleiben bei streng zylinderförmiger Geometrie des Innern- und Außenzylinders des Taylorreaktors die Bedingungen für die Taylor-Wirbelströmung auf der gesamten Länge des Ringspalts, d. h. des gesamten Reaktorvolumens, erhalten.

25   Sollen indes die bekannten Taylorreaktoren für Stoffumwandlungen verwendet werden, bei denen sich die Viskosität  $\nu$  des Fluids mit fortschreitender Umwandlung in axialer Durchflußrichtung stark ändert, verschwinden die Taylor-Wirbel oder bleiben ganz aus. Im Ringspalt ist dann noch die Couette-Strömung, eine konzentrische, laminare Schichtenströmung, zu beobachten. Hier kommt es  
30   zu einer unerwünschten Veränderung der Durchmischungs- und Strömungsverhältnisse im Taylorreaktor. Er weist in diesem Betriebszustand

Strömungscharakteristika auf, die denen des laminar durchströmten Rohres vergleichbar sind, was ein erheblicher Nachteil ist. So kommt es beispielsweise bei der Polymerisation in Masse oder in Lösung zu einer unerwünscht breiten Molmassenverteilung und chemischen Uneinheitlichkeit der Polymerisate.

- 5 Außerdem können aufgrund der schlechten Reaktionsführung erhebliche Mengen an Restmonomeren resultieren, welche dann aus dem Taylorreaktor ausgetragen werden müssen. Es kann aber auch zur Koagulation und Ablagerung von Polymerisaten kommen, was u. U. sogar zum Verstopfen des Reaktors oder des Produktauslasses führen kann. Unerwünschte technische Effekte dieser oder
- 10 ähnlicher Art treten auch bei dem thermischen Abbau hochmolekularer Stoffe wie Polymerisate u.a. auf. Insgesamt können nicht mehr die gewünschten Produkte, wie etwa Polymerisate mit sehr enger Molmassenverteilung, erhalten werden, sondern nur noch solche, die in ihrem Eigenschaftsprofil den Anforderungen nicht entsprechen.

15

- Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es, einen neuen Taylorreaktor vorzuschlagen, welcher die Nachteile des Standes der Technik nicht mehr länger aufweist, sondern es ermöglicht, die Umwandlung von Stoffen selbst dann einfach, elegant, problemlos und in hohen Ausbeuten durchzuführen, wenn sie
- 20 von einer starken Änderung der Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums, begleitet ist.

- Außerdem ist es Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein neues Verfahren zur Stoffumwandlung unter den Bedingungen der Taylor-Wirbelströmung zu finden, bei dem sich die Viskosität  $\nu$  des Fluids im Ringspalt, d. h. des
- 25 Reaktionsmediums, stark ändert.

Demgemäß wurde der neue Taylorreaktor zur Durchführung von Stoffumwandlungen gefunden mit

- 30 a) einer äußeren Reaktorwand (1) und einem hierin befindlichen konzentrisch oder exzentrisch angeordneten Rotor (2), einem

Reaktorboden (3) und einem Reaktordeckel (4), welche zusammen das ringspaltförmige Reaktorvolumen (5) definieren,

- b) mindestens einer Vorrichtung (6) zur Zudosierung von Edukten sowie
  - 5 c) einer Vorrichtung (7) für den Produktablauf,
- wobei
- d) bei der Stoffumwandlung eine Änderung der Viskosität  $\nu$   
10 des Reaktionsmediums eintritt und
  - e) die Reaktorwand (1) und/oder der Rotor (2) geometrisch derart gestaltet ist oder sind, daß auf im wesentlichen der gesamten Reaktorlänge im Reaktorvolumen (5) die Bedingungen für die Taylor-Wirbelströmung erfüllt sind.

15

Im folgenden wird der neue Taylorreaktor zur Durchführung der Stoffumwandlungen der Kürze halber als "erfindungsgemäßer Taylorreaktor" bezeichnet. Dementsprechend wird das neue Verfahren zu Umwandlung von Stoffen unter den Bedingungen der Taylor-Wirbelströmung als  
20 "erfindungsgemäßes Verfahren" bezeichnet.

Im Hinblick auf den Stand der Technik war überraschend und für den Fachmann nicht vorhersehbar, daß es möglich ist, durch die geometrische Gestaltung der Reaktorwand (1) und/oder des Rotors (2) bei axialem Durchfluß des  
25 Reaktionsmediums durch den Taylorreaktor selbst dann auf der gesamten Reaktorlänge die Bedingungen der Taylor-Wirbelströmung beizubehalten, wenn sich die Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums bei seiner Passage durch den Ringspalt stark ändert.

30 Bei der Änderung der Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums kann es sich erfindungsgemäß um einen Anstieg oder einen Abfall handeln. Beide Änderungen

können im Einzelfall mehrere Zehnerpotenzen betragen. Ein solch hoher Anstieg der Viskosität  $v$  tritt beispielsweise bei der Polymerisation in Masse oder in Lösung ein. Umgekehrt resultiert ein solch hoher Abfall der Viskosität  $v$  bei der Depolymerisation. Doch selbst unter diesen verfahrenstechnisch besonders anspruchsvollen Bedingungen bleibt im erfindungsgemäßen Taylorreaktor die Taylor-Wirbelströmung erhalten.

Bei dem erfindungsgemäßen Taylorreaktor ist die äußere Reaktorwand (1) stationär, wogegen der Rotor (2) sich dreht. In einer weiteren Varianten rotieren die äußere Reaktorwand (1) und der Rotor (2) in die gleiche Richtung, wobei die Winkelgeschwindigkeit des Rotors (2) größer ist als die Winkelgeschwindigkeit der äußeren Reaktorwand (1). In einer weiteren Variante rotieren die äußere Reaktorwand (1) und der Rotor (2) in entgegengesetzter Richtung. Demnach handelt es sich bei der Variante mit der stationären äußeren Reaktorwand (1) um einen Sonderfall der zweiten und dritten Variante, welche indes aufgrund des einfachen Aufbaus und der erheblich einfacheren verfahrenstechnischen Kontrolle bevorzugt ist.

Die äußere Reaktorwand (1) und der Rotor (2) weisen über die gesamte Reaktorlänge hinweg - im Querschnitt gesehen - einen im wesentlichen kreisförmigen Umfang auf. Im Sinne der vorliegenden Erfindung ist unter dem Begriff "im wesentlichen kreisförmig" streng kreisförmig, oval, elliptisch oder dreieckig, rechteckig, quadratisch, fünfeckig, sechseckig oder mehreckig mit abgerundeten Ecken zu verstehen. Aus Gründen der einfacheren Herstellbarkeit, des einfachen Aufbaus und der bedeutend einfacheren Aufrechterhaltung konstanter Bedingungen über die gesamte Reaktorlänge hinweg ist ein streng kreisförmiger Umfang von Vorteil.

Erfindungsgemäß ist die Innenwand der äußeren Reaktorwand (1) und/oder die Oberfläche des Rotors (2) glatt oder rau, d. h., die betreffenden Flächen haben eine geringe oder hohe Oberflächenrauigkeit. Zusätzlich oder alternativ hierzu



weist die Innenwand der äußeren Reaktorwand (1) und/oder die Oberfläche des Rotors (2) ein reliefartiges radiales und/oder axiales, vorzugsweise radiales, Oberflächenprofil auf. Ist ein radiales Oberflächenprofil vorhanden, ist es vorteilhafterweise in etwa oder genau so dimensioniert wie die Taylor-  
5 Wirbelringe.

Erfindungsgemäß ist es von bevorzugt, wenn die Innenwand der äußeren Reaktorwand (1) und die Oberfläche des Rotors (2) glatt sind, um tote Winkel, in denen sich Gasblasen oder Edukte und Produkte absetzen könnten, zu vermeiden.

10

Der erfindungsgemäße Taylorreaktor ist - in Längsrichtung gesehen - vertikal, horizontal oder in einer Lage zwischen diesen beiden Richtungen gelagert. Erfindungsgemäß von Vorteil ist die vertikale Lagerung. Wenn der erfindungsgemäße Taylorreaktor nicht horizontal gelagert ist, kann ihn das  
15 Reaktionsmediums entgegen der Schwerkraft von unten nach oben oder mit der Schwerkraft von oben nach unten durchströmen. Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn das Reaktionsmedium entgegen der Schwerkraft bewegt wird.

Der Rotor (2) des erfindungsgemäßen Taylorreaktors ist zentrisch oder  
20 exzentrisch gelagert. D. h., seine Längsachse stimmt mit der Längsachse der äußeren Reaktorwand (1) überein (zentrisch) oder nicht (exzentrisch). In letzterem Fall kann die Längsachse des Rotors (2) parallel zur Längsachse der äußeren Reaktorwand (1) liegen oder hiergegen in einem spitzen Winkel geneigt sein. Erfindungsgemäß ist es von Vorteil, wenn der Rotor (2) zentrisch gelagert ist.

25

Der erfindungsgemäße Taylorreaktor enthält als weitere wesentlichen Bestandteile einen Reaktorboden (3) und einen Reaktordeckel (4), welche zusammen mit der äußeren Reaktorwand (1) und dem Rotor (2) das ringspaltförmige Reaktorvolumen (5) definieren und es druck- und gasdicht nach außen  
30 abschließen. Geeignete Reaktorböden (3) und Reaktordeckel (4) sind üblich und

bekannt; beispielhaft sei auf die Patentschriften DE-B-1 071 241 und EP-A-0 498 583 verwiesen.

Desweiteren enthält der erfindungsgemäße Taylorreaktor als weiteren  
5 wesentlichen Bestandteil mindestens eine übliche und bekannte Vorrichtung (6)  
zur Zudosierung von Edukten. Ein Beispiel einer geeigneten Vorrichtung (6) ist  
eine Düse mit geeignetem Querschnitt. Die Vorrichtung (6) kann in den  
Reaktorboden (3), den Reaktordeckel (4), die äußere Reaktorwand (1) oder den  
Rotor (2) eingelassen sein. Darüber hinaus kann der erfindungsgemäße  
10 Taylorreaktor noch mindestens eine weitere Vorrichtung (6) enthalten, welche in  
gleicher Höhe wie die erste oder in Durchflußrichtung versetzt von dieser  
angeordnet ist. Eine solche weitere Vorrichtung (6) ist insbesondere dann von  
Vorteil, wenn Edukte und/oder Katalysatoren nachdosiert werden sollen.  
Üblicherweise sind die Vorrichtungen (6) über geeignete Zuleitungen mit  
15 Dosierpumpen, Vorratsgefäßen u.a. verbunden.

Ein weiterer wesentlicher Bestandteil des erfindungsgemäßen Taylorreaktors bis  
die Vorrichtung (7) für den Ablauf der Produkte. Je nach dem ist die Vorrichtung  
(7) in den Reaktorboden (3), die äußere Reaktorwand (1) oder in den  
20 Reaktordeckel (4) eingelassen. Auch sie ist üblicherweise über geeignete  
Zuleitungen mit Dosierpumpen, Vorratsgefäßen u.a. verbunden. Erfindungsgemäß  
ist es von besonderem Vorteil, die Vorrichtung (7) am oberen Ende des  
erfindungsgemäßen Taylorreaktors anzubringen, wobei die höchste Stelle  
besonders bevorzugt ist, weil bei dieser Konfiguration die Bildung einer Gasphase  
25 vermieden wird. Dies ist insbesondere dann notwendig, wenn die Gefahr der  
Bildung explosionsfähiger Gemische oder der Abscheidung von Feststoffen wie  
Polymerisaten aus der Gasphase besteht.

Die Bestandteile des erfindungsgemäßen Taylorreaktors, insbesondere äußere  
30 Reaktorwand (1), der Rotor (2), der Reaktorboden (3), der Reaktordeckel (4), die  
Vorrichtung (6) zur Zudosierung von Edukten sowie die Vorrichtung (7) für den

Produktablauf, können aus den unterschiedlichsten geeigneten Materialien bestehen. Beispiel geeigneter Materialien sind Kunststoff, Glas oder Metalle wie Edelstahl, Nickel oder Kupfer. Hierbei können die einzelnen Bestandteile aus jeweils unterschiedlichen Materialien hergestellt sein. Die Auswahl der

5 Materialien richtet sich nach dem Verwendungszweck des erfindungsgemäßen Taylorreaktors und nach den einzelnen Reaktionsbedingungen und kann deshalb vom Fachmann in einfacher Weise vorgenommen werden. Soll beispielsweise der erfindungsgemäße Taylorreaktor als Photoreaktor verwendet werden, kann der Rotor (2) aus Glas bestehen, welches für aktinisches Licht durchlässig ist. Wenn

10 bei den Stoffumwandlungen die Taylor-Wirbelringe und ihre axiale Bewegung visuell überwacht werden sollen, ist es erfindungsgemäß von Vorteil, die äußere Reaktorwand (1) aus Glas oder transparentem Kunststoff anzufertigen. Erfindungsgemäße Taylorreaktoren dieser Art eignen sich auch hervorragend für die Durchführung von Vorversuchen. Ansonsten ist es erfindungsgemäß von

15 Vorteil, Edelstahl zu verwenden.

Der Rotor (2) ist in üblicher und bekannter Weise beispielsweise über eine Magnetkupplung mit einem stufenlos regelbaren Antrieb verbunden.

20 Außer den vorstehend in Detail beschriebenen wesentlichen Bestandteilen kann der erfindungsgemäße Taylorreaktor noch übliche und bekannte Vorrichtung enthalten, welche dem Heizen und/oder Kühlen oder dem Messen von Druck, Temperatur, Stoffkonzentrationen, Viskosität und anderen physikalisch chemischen Größen dienen, sowie mit üblichen und bekannten mechanischen,

25 hydraulischen und/oder elektronischen Meß- und Regelvorrichtungen verbunden sein.

Alle diese Bestandteile des erfindungsgemäßen Taylorreaktors sind so miteinander verbunden, daß das Reaktionsmedium druck- und gasdicht

30 eingeschlossen und in geeigneter Weise temperiert wird. Vorteilhafterweise

erfolgt die Temperierung in einer oder in mehreren Temperaturzonen, die im Gleich- oder im Gegenstrom betrieben werden.

- Wird der erfindungsgemäße Taylorreaktor für das erfindungsgemäße Verfahren
- 5 verwendet, bei welchem die Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums in Durchflußrichtung stark ansteigt, werden die äußere Reaktorwand (1) und/oder der Rotor (2) geometrisch derart gestaltet, daß sich der Ringspalt in Durchflußrichtung verbreitert.
- 10 Erfindungsgemäß kann sich hierbei der Ringspalt - im Längsschnitt durch den erfindungsgemäßen Taylorreaktor gesehen - nach beliebigen geeigneten mathematischen Funktionen kontinuierlich oder diskontinuierlich verbreitern. Das Ausmaß der Verbreiterung richtet sich nach dem erwarteten Anstieg der Viskosität des Reaktionsmediums in Durchflußrichtung und kann vom Fachmann
- 15 anhand der Taylorformel abgeschätzt und/oder anhand einfacher Vorversuche ermittelt werden.

- Beispiele geeigneter mathematischer Funktionen, nach denen sich - im Längsschnitt durch den erfindungsgemäßen Taylorreaktor gesehen - der Umfang
- 20 der äußeren Reaktorwand (1) und/oder des Rotors (2) erhöht oder erhöhen, sind Geraden, mindestens zwei Geraden, die unter einem stumpfen Winkel aufeinander stoßen, Hyperbeln, Parabeln, e-Funktionen oder Kombinationen dieser Funktionen, welche kontinuierlich oder diskontinuierlich ineinander übergehen.

- 25 Zum einen kann die Verbreiterung dadurch erreicht werden, daß sich der Umfang der äußeren Reaktorwand (1) in Durchflußrichtung gesehen erhöht, wobei der Umfang des Rotors (2) konstant bleibt, sich ebenfalls erhöht oder sich verringert. Zum anderen kann dies erreicht werden, indem der Durchmesser der äußeren Reaktorwand (1) konstant gehalten wird, wogegen sich der Umfang des Rotors (2)
- 30 verringert. Im Hinblick darauf, daß bei der Verringerung des Umfangs des Rotors (2) die Fläche zur Übertragung der Reibungskräfte immer geringer wird und sich

der Rotor (2) deshalb immer schneller drehen müßte, wird den erfindungsgemäßen Varianten der Vorzug gegeben, bei denen der Umfang des Rotors (2) konstant bleibt oder sich ebenfalls erhöht.

- 5   Vorteilhafte erfindungsgemäße Taylorreaktoren weisen eine konische äußere Reaktorwand (1) auf, die demnach die Form eines einzelnen Kegelstumpfs hat oder aus mehreren Kegelstümpfen zusammengesetzt ist. Der Kegelstumpf oder die Kegelstümpfe kann oder können dabei kissenförmig oder tonnenförmig verzerrt sein. Indes werden unverzernte Kegelstümpfe besonders bevorzugt.

10

- Vorteilhafte erfindungsgemäße Taylorreaktoren weisen außerdem einen konischen oder zylinderförmigen Rotor (2) auf. Hinsichtlich der Form des konischen Rotors (2) gilt das im vorstehenden Absatz Gesagte sinngemäß. Desgleichen kann der zylinderförmige Rotor (2) kissenförmig oder tonnenförmig  
15   verzerrt sein. Erfindungsgemäß werden unverzernte zylinderförmige Rotoren (2) besonders bevorzugt verwendet.

- Wird der erfindungsgemäße Taylorreaktor für das erfindungsgemäße Verfahren verwendet, bei welchem die Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums in  
20   Durchflußrichtung stark abfällt, werden die äußere Reaktorwand (1) und/oder der Rotor (2) geometrisch derart gestaltet, daß sich der Ringspalt in Durchflußrichtung verengt.

- Erfindungsgemäß kann sich hierbei der Ringspalt - im Längsschnitt durch den  
25   erfindungsgemäßen Taylorreaktor gesehen - nach beliebigen geeigneten mathematischen Funktionen kontinuierlich oder diskontinuierlich verengen. Das Ausmaß der Verengung richtet sich nach dem erwarteten Abfall der Viskosität des Reaktionsmediums in Durchflußrichtung und kann vom Fachmann anhand der Taylorformel (I) abgeschätzt und/oder anhand einfacher Vorversuche ermittelt  
30   werden.

Beispiele geeigneter mathematischer Funktionen, nach denen sich - im Längsschnitt durch den erfindungsgemäßen Taylorreaktor gesehen - der Umfang der äußeren Reaktorwand (1) und/oder des Rotors (2) verringert oder verringern, sind Geraden, mindestens zwei Geraden, die unter einem stumpfen Winkel  
5 aufeinander stoßen, Hyperbeln, Parabeln, e-Funktionen oder Kombinationen dieser Funktionen, welche kontinuierlich oder diskontinuierlich ineinander übergehen.

Zum einen kann die Verengung dadurch erreicht werden, daß sich der Umfang  
10 der äußeren Reaktorwand (1) in Durchflußrichtung gesehen verringert, wobei der Umfang des Rotors (2) konstant bleibt, sich erhöht oder sich ebenfalls verringert. Zum anderen kann dies erreicht werden, indem der Durchmesser der äußeren Reaktorwand (1) konstant gehalten wird, wogegen sich der Umfang des Rotors (2) erhöht. Im Hinblick darauf, daß bei der Verringerung des Umfangs des Rotors (2)  
15 die Fläche zur Übertragung der Reibungskräfte immer geringer wird und sich der Rotor (2) deshalb immer schneller drehen müßte, wird den erfindungsgemäßen Varianten der Vorzug gegeben, bei denen der Umfang des Rotors (2) konstant bleibt oder sich ebenfalls erhöht.

20 Vorteilhafte erfindungsgemäße Taylorreaktoren weisen auch hier eine konische äußere Reaktorwand (1) auf, die demnach die Form eines einzelnen Kegelstumpfs hat oder aus mehreren Kegelstümpfen zusammengesetzt ist. Der Kegelstumpf oder die Kegelstümpfe kann oder können dabei kissenförmig oder tonnenförmig verzerrt sein. Indes werden unverzernte Kegelstümpfe besonders bevorzugt.

25 Vorteilhafte erfindungsgemäße Taylorreaktor weisen außerdem einen konischen oder zylinderförmigen Rotor (2) auf. Hinsichtlich der Form des konischen Rotors (2) gilt das im vorstehenden Absatz Gesagte sinngemäß. Desgleichen kann der zylinderförmige Rotor (2) kissenförmig oder tonnenförmig verzerrt sein.  
30 Erfindungsgemäß werden unverzernte zylinderförmige Rotoren (2) besonders bevorzugt verwendet.

Der erfindungsgemäße Taylorreaktor ist vorzüglich für die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens geeignet. Das erfindungsgemäße Verfahren kann kontinuierlich oder diskontinuierlich betrieben werden; seine besonderen Vorteile  
5 werden indes beim kontinuierlichen Betrieb offenbar.

Zu seiner Durchführung wird das Edukt oder werden die Edukte über mindestens eine Vorrichtung (6) dem ringspaltförmigen Reaktorvolumen (5) kontinuierlich zudosiert. Die resultierenden Produkte werden kontinuierlich über die  
10 Vorrichtung (7) aus dem erfindungsgemäßen Taylorreaktor abgeführt und in geeigneter Weise aufgearbeitet.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren liegt die Verweilzeit im Reaktor zwischen 0,5 Minuten und 5 Stunden, vorzugsweise 2 Minuten und 3 Stunden, besonders  
15 bevorzugt 10 Minuten und 2 Stunden und insbesondere 15 Minuten und 1,5 Stunden. Die für die jeweilige Stoffumwandlung geeignete Verweilzeit kann der Fachmann anhand einfacher Vorversuche ermitteln oder anhand von kinetischen Daten abschätzen.

20 Der Druck im ringspaltförmigen Reaktionsvolumen (5) liegt bei 0 bis 200 bar, weswegen das erfindungsgemäße Verfahren auch mit verflüssigten oder überkritischen Gasen, wie überkritisches Kohlendioxid ausgeführt werden kann. Vorzugsweise liegt der Druck bei 0,5 bis 100, insbesondere 0,5 bis 50 bar. Wird das erfindungsgemäße Verfahren bei höherem Druck durchgeführt, ist der  
25 erfindungsgemäße Taylorreaktor mit Zuleitungen und Ableitungen druckdicht auszustatten, um den Sicherheitsvorschriften genüge tun.

Das erfindungsgemäße Verfahren wird bei Temperaturen zwischen -100 und 500 °C durchgeführt. Zu diesem Zweck wird der erfindungsgemäße Taylorreaktor mit  
30 geeigneten üblichen und bekannten Kühl- und/oder Heizvorrichtungen ausgerüstet. Vorzugsweise liegen die Reaktionstemperaturen zwischen -10 und

300 °C, insbesondere 50 und 250 °C. Die für die jeweilige Stoffumwandlung geeignete Temperatur kann der Fachmann anhand einfacher Vorversuche ermitteln oder anhand bekannter thermodynamischer Daten abschätzen.

- 5     Vorteilhafterweise liegt die Taylorzahl  $Ta$  des Reaktionsmediums oder des Fluids bei 1 bis 10000, vorzugsweise 5 bis 5000 und insbesondere 10 bis 2500. Hierbei soll Reynoldszahl, die durch die nachfolgende Gleichung (II) definiert ist, bei 1 bis 10000 betragen.

10      $Re = vd/v$  (II)

mit  $v$  = axiale Geschwindigkeit und

mit  $d = r_a - r_i$  ( $r_i$  = äußerer Radius des Innenzylinders;  $r_a$  = innerer Radius des Außenzylinders und  $d$  = Spaltbreite).

15

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren ändert sich die Viskosität  $v$  des Reaktionsmediums. Hierbei kann die Viskosität  $v$  steigen oder sinken. Die Änderung kann mehrere Zehnerpotenzen betragen, ohne daß dies die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens stört. Es ist lediglich dafür

- 20     Sorge zu tragen, daß sich der Ringspalt des erfindungsgemäßen Taylorreaktors in der Weise verbreitert oder verengt, wie es der Änderung der Viskosität im Verlauf der Stoffumwandlungen entspricht, so daß die Taylor-Wirbelströmung im gesamten Reaktor erhalten bleibt. Den Verlauf der Viskositätsänderung kann der Fachmann anhand einfacher Vorversuche ermitteln.

25

Ein ganz besonderer Vorteil des erfindungsgemäßen Taylorreaktors und des erfindungsgemäßen Verfahrens ist es, das örtliche Nacheinander im Taylorreaktor mit dem zeitlichen Nacheinander von diskontinuierlichen oder halbkontinuierlichen (Dosier-) Prozessen zu verknüpfen. Der erfindungsgemäße

- 30     Taylorreaktor und das erfindungsgemäße Verfahren bieten somit den Vorteil eines kontinuierlichen quasi "einstufigen" Prozesses, so daß in dem zuerst



durchströmten Teilstück des Taylorreaktors eine erste Reaktion ablaufen kann und in einem – in axialer Durchflußrichtung gesehen - zweiten oder weiteren Teilstück nach einer weiteren Vorrichtung (6) zur Zudosierung von Edukten und/oder Katalysatoren eine zweite, dritte, etc. Reaktion.

5

Beispiele für Stoffumwandlungen, auf die das erfindungsgemäße Verfahren mit besonderem Vorteil angewandt werden kann, sind insbesondere der Aufbau oder Abbau niedermolekularer und hochmolekularer Stoffe, wie z.B. die Polymerisation von Monomeren in Masse, Lösung, Emulsion oder Suspension  
10 oder durch Fällungspolymerisation einerseits und die Depolymerisation der hierbei resultierenden Polymerisate oder anderer hochmolekularer Stoffe andererseits. Im Rahmen der vorliegenden Erfindungen ist unter dem Begriff "Polymerisation" auch die Copolymerisation und die Blockmischpolymerisation sowie die Polykondensation und die Polyaddition zu verstehen.

15

Weitere Beispiele für solche Stoffumwandlungen sind

- polymeranaloge Reaktionen, wie die Veresterung, Amidierung oder Urethanisierung von Polymeren, welche Seitengruppen enthalten, die für  
20 solche Reaktionen geeignet sind,
- die Herstellung olefinisch ungesättigter, mit Elektronenstrahlen oder ultraviolettem Licht härtbaren Materialien,
- die Herstellung von Polyurethanharzen und modifizierten Polyurethanharzen wie acrylierten Polyurethanen,
- 25 - die Herstellung von (Poly) Harnstoffen oder modifizierten (Poly) Harnstoffen,
- der Molekulargewichtsaufbau von Verbindungen, welche mit Isocyanatgruppen terminiert sind,
- oder Reaktionen, welche zur Bildung von Mesosphasen führen, wie sie  
30 beispielsweise von Antonietti und Göltner in dem Artikel "Überstruktur funktioneller Kolloide: eine Chemie im Nanometerbereich " in

Angewandte Chemie, Band 109, 1997, Seiten 944 bis 964, oder von Ober  
und Wengner in dem Artikel "Polyelectrolyte-Surfactant Complexes in the  
Solid State: Facile Building Blocks for Self-Organizing Materials" in  
Advanced Materials, Band 9, Heft 1, 1997, Seiten 17 bis 31, beschrieben  
5 werden.

Mit ganz besonderem Vorteil wird das erfindungsgemäße Verfahren für die  
Polymerisation von olefinisch ungesättigten Monomeren angewandt, weil hierbei  
die besonderen Vorteile des erfindungsgemäßen Taylorreaktors und es  
10 erfindungsgemäßen Verfahrens besonders offen zu Tage treten.

So wird das erfindungsgemäße Verfahren besonders bevorzugt für die  
Herstellung von chemisch einheitlich zusammengesetzten Copolymerisaten  
verwendet. Hierbei wird das schneller polymerisierende Comonomere oder  
15 werden die schneller polymerisierenden Comonomeren über in axialer Richtung  
hintereinander angeordnete Vorrichtungen (6) zudosiert, so daß das  
Comonomerenverhältnis über die gesamte Länge des Reaktors hinweg konstant  
gehalten wird.

20 Auch für die Pfropfmischpolymerisation wird das erfindungsgemäße Verfahren  
besonders bevorzugt verwendet. Hierbei wird in dem ersten Teilstück des  
erfindungsgemäßen Taylorreaktors das sogenannte Backbone-Polymerisat  
hergestellt, wonach über mindestens eine weitere, in axialer Richtung versetzte  
Vorrichtung (6) mindestens ein Comonomer, welches die Pfropfäste bildet,  
25 zudosiert wird. Das Comonomer wird oder die Comonomeren werden dann in  
erfindungsgemäßer Verfahrensweise in mindestens einem weiteren Teilstück des  
erfindungsgemäßen Taylorreaktors auf das Backbone-Polymerisat aufgefropft.  
Sofern mehrere Comonomere verwendet werden, können sie einzeln über jeweils  
eine Vorrichtung (6) oder als Gemisch durch eine oder mehrere Vorrichtungen (6)  
30 zudosiert werden. Werden mindestens zwei Comonomere einzelnen und  
nacheinander durch mindestens zwei Vorrichtungen (6) zudosiert, gelingt sogar

die Herstellung von Pfropfästen, welche für sich selbst gesehen Blockmischpolymerisate sind, in besonders einfacher und eleganter Weise.

- Selbstverständlich kann dieses vorstehend beschriebene Konzept auch der
- 5 Herstellung von Blockmischpolymerisaten als solchen dienen.

- In analoger Weise kann mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens die Herstellung von Kern-Schale-Latices besonders einfach und elegant verwirklicht werden. So wird zunächst im ersten Teilstück des erfindungsgemäßen
- 10 Taylorreaktors der Kern durch Polymerisation mindestens eines Monomeren hergestellt. Über mindestens eine weitere Vorrichtung (6) wird mindestens ein weiteres Comonomer zudosiert und die Schale in mindestens einem weiteren Teilstück auf den Kern aufpolymerisiert. In dieser Weise können mehrere Schalen auf den Kern aufgebracht werden.

- 15 Auch die Herstellung von Polymerdispersionen kann mit Hilfe des erfindungsgemäßen Verfahrens erfolgen. Beispielsweise wird mindestens ein Monomer in homogener Phase, insbesondere in Lösung, in einem ersten Teilstück des erfindungsgemäßen Taylorreaktors (co)polymerisiert, wonach über
- 20 mindestens eine weitere Vorrichtung (6) ein Fällungsmittel zudosiert wird, wodurch die Polymerdispersionen resultiert.

- Bei allen Anwendungen weist der erfindungsgemäße Taylorreaktor den besonderen Vorteil einer großen spezifischen Kühlfläche auf, die eine besonders
- 25 sichere Reaktionsführung gestattet.

- Beispiele geeigneter Monomeren, welche für das erfindungsgemäße Verfahren in Betracht kommen, sind acyclische und cyclische, gegebenenfalls funktionalisierte Monoolefine und Diolefine, vinylaromatische Verbindungen, Vinylether,
- 30 Vinylester, Vinylamide, Vinylhalogenide, Allylether und Allylester, Acrylsäure,

und Methacrylsäure und deren Ester, Amide und Nitrile und Maleinsäure, Fumarsäure und Itaconsäure und deren Ester, Amide, Imide und Anhydride.

- Beispiele geeigneter Monoolefine sind Ethylen, Propylen, 1-Buten, 1-Penten, 1-  
5 Hexen, 1-Hepten, 1-Octen, Cyclobuten, Cyclopenten und Cyclohexen.

Beispiel geeigneter Diolefine sind Butadien, Isopren, Cyclopentadien und Cyclohexadien.

- 10 Beispiele geeigneter vinylaromatischer Verbindungen sind Styrol, alpha-Methylstyrol, 2-, 3- und 4-Chlor-, -Methyl-, -Ethyl-, -Propyl- und -Butyl- und tert.-Butylstyrol und -alpha-methylstyrol.

- Ein Beispiel einer geeigneten Vinylverbindung bzw. eines funktionalisierten  
15 Olefins ist Vinylcyclohexandiol.

Beispiele geeigneter Vinylether sind Methyl-, Ethyl-, Propyl-, Butyl- und Pentylvinylether, Allylmonopropoxylat sowie Trimethylolpropan-mono-, -di- und -triallylether.

20

Beispiel geeigneter Vinylester sind Vinylacetat und -propionat sowie die Vinylester der Versätsäure und anderer quartärer Säuren.

- Beispiele geeigneter Vinylamide sind N-Methyl-, N,N-Dimethyl-, N-Ethyl-, N-  
25 Propyl-, N-Butyl-, N-Amyl-, N-Cyclopentyl- und N- Cyclohexylvinylamid sowie N-Vinylpyrrolidon und -epsilon-caprolactam.

Beispiele geeigneter Vinylhalogenide sind Vinylfluorid und -chlorid.

- 30 Beispiele geeigneter Vinylidenhalogenide sind Vinylidenfluorid und chlorid.

Beispiele geeigneter Allylether sind Methyl-, Ethyl-, Propyl-, Butyl-, Pentyl-, Phenyl- und Glycidylmonoallylether.

Beispiele geeigneter Allylester sind Allylacetat und -propionat.

5

Beispiele geeigneter Ester der Acrylsäure und Methacrylsäure sind Methyl-, Ethyl-, Propyl-, n-Butyl-, Isobutyl-, n-Pentyl-, n-Hexyl-, 2-Ethyl-hexyl-, Isodecyl-, Decyl-, Cyclohexyl-, t-Butylcyclohexyl-, Norbonyl-, Isobornyl-, 2- und 3-Hydroxypropyl-, 4-Hydroxybutyl-, Trimethylolpropanmono-,  
10 Pentaerythritmono- und Glycidyl(meth)acrylat. Außerdem kommen noch die Di-, Tri- und Tetra-(meth)acrylate von Ethylenglykol, Di-, Tri- und Tetraethylenglykol, Propylenglykol, Dipropylenglykol, Butylenglykol, Dibutylenglykol, Glycerin, Trimethylolpropan und Pentaerythrit in Betracht. Allerdings werden sie nicht alleine, sondern immer in untergeordneten Mengen  
15 gemeinsam mit den monofunktionellen Monomeren verwendet.

Beispiele geeigneter Amide der Acrylsäure Methacrylsäure sind (Meth)Acrylsäureamid sowie (Meth)Acrylsäure-N-methyl-, -N,N-dimethyl-, -N-ethyl-, -N-propyl-, -N-butyl-, -N-amyl-, -N-cyclopentyl- und -N-cyclohexylamid.

20

Beispiele geeigneter Nitrile sind Acrylnitril und Methacrylnitril.

Beispiele geeigneter Ester, Amide, Imide und Anhydride der Maleinsäure, Fumarsäure und Itaconsäure sind Maleinsäure-, Fumarsäure- und  
25 Itaconsäuredimethyl-, -diethyl-, -dipropyl- und -dibutylester, Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäurediamid, Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäure-N,N'-dimethyl-, -N,N,N',N'-tetamethyl-, -N,N'-diethyl-, -N,N'-dipropyl-, -N,N'-dibutyl-, -N,N'-diamyl-, -N,N'-dicyclopentyl- und -N,N'-dicyclohexyldiamid, Maleinsäure-, Fumarsäure- und Itaconsäureimid und Maleinsäure-, Fumarsäure-  
30 und Itaconsäure-N-methyl-, -N-ethyl-, -N-propyl-, -N-butyl-, -N-amyl-, -N-

cyclopentyl- und -N-cyclohexylimid sowie Maleinsäure -, Fumarsäure- und Itaconsäureanhydrid.

Die vorstehend beschriebenen Monomeren können radikalisch, kationisch oder anionisch polymerisiert werden. Vorteilhafterweise werden sie radikalisch polymerisiert. Hierzu können die üblichen und bekannten anorganischen Radikalstarter wie Wasserstoffperoxid oder Kaliumperoxodisulfat oder die üblichen und bekannten organischen Radikalstarter wie Dialkylperoxide, z.B. Di-tert.-Butylperoxid, Di-tert.-amylperoxid und Dicumylperoxid; Hydroperoxide, z.B. Cumolhydroperoxid und tert.-Butylhydroperoxid; Perester, z.B. tert.-Butylperbenzoat, tert.-Butylperpivalat, tert.-Butylper-3,5,5-trimethylhexanoat und tert.-Butylper-2-ethylhexanoat; Bisazoverbindungen wie Azobisisobutyronitril; oder C-C-Starter wie 2,3-Dimethyl-2,3-diphenyl-butan oder -hexan verwendet werden. Es kommt indes auch Styrol in Betracht, das Polymerisation auch ohne Radikalstarter thermisch initiiert.

Die in erfindungsgemäßer Verfahrensweise hergestellten Polymerisate weisen besondere Vorteile auf und eignen sich deshalb hervorragend für alle Anwendungszwecke, wie sie üblicherweise für solche hochmolekularen Stoffe vorgesehen sind, wie beispielsweise die Herstellung von Formteilen. Vor allem aber kommen sie als Komponenten für Lacke, Klebstoffe und andere Beschichtungsstoffe sowie Folien in Betracht. Hierbei werden sie insbesondere als Bindemittel verwendet, weil die Lacke, die Klebstoffe und die sonstigen Beschichtungsstoffe sowie die Folien, welche die in erfindungsgemäßer Verfahrensweise hergestellten Bindemittel enthalten oder hieraus bestehen, besonders vorzügliche anwendungstechnische Eigenschaften aufweisen.

Die besonderen Vorteile des erfindungsgemäßen Verfahrens werden vor allem anhand der Lacke offenbar, welche die in erfindungsgemäßer Verfahrensweise hergestellten Bindemittel enthalten. Diese Lacke sind je nach ihrer Zusammensetzung physikalisch trocknend oder werden thermisch, mit

aktinischem Licht, insbesondere UV-Licht, oder durch Elektronenstrahlung gehärtet.

Sie liegen als Pulverlacke, Pulver-Slurry-Lacke, in organischen Medien gelöste  
5 Lacke oder wäßrige Lacke vor. Hierbei können sie Farb- und/oder Effektpigmente  
enthalten. Sie werden als Bautenanstrichmittel für den Innen- und Außenbereich,  
als Lacke für Möbel, Fenster, Coils und andere industrielle Anwendungen, als  
Automobillacke für die Erstausrüstung (OEM) oder als Autoreparaturlacke  
verwendet. Bei ihrer Verwendung auf dem Automobilsektor kommen sie als  
10 Elektrotauchlacke, Füller, Basislacke und Klarlacke in Betracht.

Bei all diesen Anwendungszwecken sind die Lacke, welche die in  
erfindungsgemäßer Verfahrensweise hergestellten Bindemittel enthalten, den  
herkömmlichen Lacken überlegen.

15

Die vorliegende Erfindung wird anhand der Zeichnung (Fig. 1) und des Beispiels  
näher erläutert.

20

**Fig. 1** Längsschnitt durch einen erfindungsgemäßen Taylorreaktor mit konischer  
äußerer Reaktorwand (1) zur visuellen Überwachung der Taylor-  
Wirbelströmung

**Beispiel 1**

**Die Kettenverlängerung von teilverseiftem Polyvinylacetat (Polyvinylalkohol)  
mit Glutardialdehyd mit Hilfe eines erfindungsgemäßen Taylorreaktors und  
des erfindungsgemäßen Verfahrens**

Für die Kettenverlängerung von teilverseiftem Polyvinylacetat (Anteil an Hydroxylgruppen: 88 mol-%; Anteil an Acetatgruppen: 12 mol-%) wurde der erfindungsgemäße Taylorreaktor gemäß Fig. 1 verwendet.

10

Der Taylorreaktor wies eine 25 cm hohe äußere Reaktorwand (1) aus Glas von streng kreisförmigem Umfang auf, deren Umfang bzw. deren Durchmesser entlang der Reaktor-achse in Durchflußrichtung gesehen linear zunahm. So lag der minimale Durchmesser der äußeren Reaktorwand (1) am Reaktorboden (3) bei  
15 52 mm, und der maximale Durchmesser am Reaktordeckel (4) lag bei 102 mm. Desweiteren enthielt der erfindungsgemäße Taylorreaktor einen geraden, zentrisch gelagerten, streng zylinderförmigen Rotor (2) aus Edelstahl mit einem Radius von 21 mm. Dadurch erhöhte sich die Spaltbreite  $d$  von 5 mm am unteren Ende des Taylorreaktors auf 30 mm am oberen Ende. Der Rotor (2) war über eine  
20 gerade Welle (2.1), welche abgedichtet durch den Reaktordeckel (4) hindurchführte, mit einem stufenlos regelbaren Rührmotor verbunden. Der Reaktordeckel (4) und der Reaktorboden (3) bestanden aus Edestahl; die Dichtung zwischen ihnen und dem entsprechenden Ende der Reaktorwand (1) erfolgte mittels üblichen und bekannten Dichtungsringen aus Kunststoff. Die Vorrichtung  
25 (6) zur Zudosierung der Edukte und die Vorrichtung (7) für den Produktablauf waren Vorstöße aus Glas mit Gewinden, woran ein Zu- und ein Ableitungsschlauch mit Hilfe von Überwurfmuttern befestigt waren.

Der Taylorreaktor wurde kontinuierlich mit einer Mischung aus 4 Teilen  
30 Polyvinylalkohol, 96,16 Teilen Wasser und 0,16 Teilen Glutardialdehyd mit einem Volumenstrom von 33,3 ml/min über die Vorrichtung (6) gespeist.



Unmittelbar vor dem Eintritt in den Taylorreaktor wurde der Mischung 42 %-ige Salpetersäure über eine separate Pumpe mit einem Volumenstrom von 0,16 ml/min zudosiert. Die mittlere Verweilzeit in Taylorreaktor betrug 30 min bei einer Temperatur von 22 °C. Die Rührerdrehzahl lag bei 250 U/min. Die Viskosität des Eduktes betrug 10 mm<sup>2</sup>/s. An der Vorrichtung (7) hatte die Lösung des kettenverlängerten Polyvinylalkohols eine Viskosität von 47 mm<sup>2</sup>/s.

Die Stoffumwandlung, d. h. die Umsetzung, wurde in einer Gesamtzeit von 5h, entsprechend 10 mittleren Verweilzeiten, durchgeführt. Im gesamten Taylorreaktor blieben während dieser Zeit die Taylorwirbel und somit die gewünschten Durchmischungs- und Strömungsverhältnisse trotz des Viskositätsanstiegs erhalten. Die Umsetzung konnte daher während des gesamten Zeitraums störungsfrei durchgeführt werden.

## 15 Beispiel 2

### **Die Herstellung eines Lösungspolymerisats hergestellt in einem erfindungsgemäßen Taylorreaktor**

20 In einem konischen 200 ml Taylorreaktor aus Edelstahl mit beheizbarem Doppelmantel wurde eine Mischung aus 15,8 Teilen Styrol, 16,5 Teilen MMA, 11,6 Teilen tert.-Butylcyclohexylacrylat, 24,7 Teilen Hydroxypropylmethacrylat, 22,3 Teilen Shellsol A, 7,4 Teilen Xylol, 0,3 Teilen Di-Tert.-Butylperoxid, 0,05 Teilen tert.-Butylperoxyethylhexanoat und 1,2 Teilen Dicumylperoxid mit zwei  
25 Pumpen zudosiert. Die Eduktzudosierung erfolgt am Reaktorboden, während das entstehende Polymer kontinuierlich am Reaktorausgang oben in der Reaktorwandung abgegriffen wurde. Die Reaktion wurde bei einer Temperatur von 160 °C und einer Rührerdrehzahl von 300 min<sup>-1</sup> durchgeführt. Die mittlere Verweilzeit des Reaktionsgemisches im Reaktor lag bei 30 min. Die entstehende  
30 Polymerschmelze hatte einen Feststoffgehalt von 68,4 % (1 h, 130 °C) und eine Viskosität von 3.0 dPas 50 %ig in Butylacetat. Die Gelchromatographische

Vermessung des Polymeren liefert eine  $M_n$  von 3215 und ein  $M_w$  von 8081. Die Glasübergangstemperatur der Polymeren betrug  $69^\circ\text{C}$ , ermittelt mittels DSC aus dem DSC-Midpoint.

### 5 Beispiel 3

**Die Herstellung eines Lacks unter Verwendung des Lösungspolymerisats gemäß Beispiel 2**

- 10 3.1 Eine Härterlösung wurde aus nachfolgenden Komponenten durch Mischen hergestellt:

	Butylacetat 98 %	40,5 Teile
	Xylol	4,0 Teile
15	Butylglykolacetat	6,0 Teile
	Katalysatorlösung (gemäß Ziff. 3.3)	1,5 Teile
	Desmodur <sup>R</sup> Z4370 <sup>1)</sup>	15,0 Teile
	Desmodur <sup>R</sup> 3390 <sup>2)</sup>	33,0 Teile
	Festkörper (Gew.-%)	42,2 Teile

20

- 3.2 Ein Einstellzusatz wurde aus nachfolgenden Komponenten durch Mischen hergestellt:

	Xylol	20,0 Teile
25	Solventhaphtha <sup>R 3)</sup>	15,0 Teile
	Benzin 135/180	10,0 Teile
	Butylglykolacetat	5,0 Teile
	Butylacetat 98 %	50,0 Teile

3.3 Eine Katalysatorlösung wurde durch Mischen von 1,0 Teilen

Dibutylzinndilaurat und 99 Teilen Butylacetat 98 %ig hergestellt<sup>1</sup>

3.4 Eine Verlaufsmittellösung wurde durch Mischen von 5,0 Teilen eines

handelsüblichen Verlaufsmittels auf der Basis eines polyethermodifizierten

5 Methylpolysiloxans (Baysilone<sup>R</sup> OL44<sup>4)</sup>) und 95 Teilen Xylol hergestellt.

3.5 Ein Stammlack wurde durch Mischen der folgenden Komponenten

hergestellt:

	Butylacetat	4,0 Teile
10	Xylol	4,15 Teile
	Tinuvin <sup>R</sup> 292 <sup>5)</sup>	0,95 Teile
	Sanduvon <sup>R</sup> VSU <sup>6)</sup>	1,20 Teile
	Katalysatorlösung (gemäß Ziff. 3.3)	3,7 Teile
	Verlaufsmittellösung (gemäß Ziff. 3.4)	2,0 Teile
15	Triisodecylphosphit	0,05 Teile
	Lösungspolymerisat (gemäß Bsp.2)	70,85 Teile
	Macrynal <sup>R</sup> SM513 <sup>7)</sup>	13,1 Teile

180 Teile des Stammlacks gemäß Ziff. 3.5 wurden mit 90 Teilen Härterlösung

20 gemäß Ziff. 3.1 und 16,2 Teilen Einstellzusatz gemäß Ziff. 3.2 gemischt und appliziert. Der Lack wies eine ausgezeichnete Verarbeitbarkeit auf. Die Topfzeit betrug 4 h. Die Pendeldämpfung eines bei Raumtemperatur getrockneten 1 Woche alten Lackfilms lag bei 136 sec..

<sup>1</sup> Handelsübliches Polyisocyanat der Fa. Bayer AG auf Basis von Isophorondiisocyanat mit einem Festkörpergehalt von 70 %.

<sup>2</sup> Handelsübliches Polyisocyanat der Fa. Bayer AG auf Basis von Hexamethylendiisocyanat.

<sup>3</sup> Handelsübliches aromatisches Kohlenwasserstoffgemisch der Fa. Shell GmbH

<sup>4</sup> Handelsübliches Verlaufsmittel der Fa. Bayer AG

<sup>5</sup> Handelsübliches Lichtschutzmittel der Fa. Ciba Geigy auf Basis eines sterisch gehinderten Amins (HALS)

<sup>6</sup> Handelsübliches Lichtschutzmittel der Fa. Sandoz

<sup>7</sup> Hydroxylgruppenhaltiges Acrylatharz der Fa. Bayer AG

Der erhaltene Klarlack wurde auf einem konventionellen Basislack der Marke Glasurit Reihe 55 lackiert. Die durch Trocknung bei 60 °C über 30 min. erhaltenen Beschichtungen wiesen einen Glanz nach DIN 7530 von 87 ° - gemessen unter einem 20° Winkel - auf. Die Beschichtungen hatten einen guten

5 Decklackstand.

**Patentansprüche**

1. Taylorreaktor zur Durchführung von Stoffumwandlungen mit
  - 5 a) einer äußeren Reaktorwand (1) und einem hierin befindlichen konzentrisch oder exzentrisch angeordneten Rotor (2), einem Reaktorboden (3) und einem Reaktordeckel (4), welche zusammen das ringspaltförmige Reaktorvolumen (5) definieren,
  - b) mindestens einer Vorrichtung (6) zur Zudosierung von Edukten  
10 sowie
  - c) einer Vorrichtung (7) für den Produktablauf,  
  
dadurch gekennzeichnet, daß
  - 15 d) bei der Stoffumwandlung eine Änderung der Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums eintritt und
  - e) die Reaktorwand (1) und/oder der Rotor (2) geometrisch derart gestaltet ist oder sind, daß auf im wesentlichen der gesamten Reaktorlänge im Reaktorvolumen (5) die Bedingungen für die  
20 Taylor-Wirbelströmung erfüllt sind.
2. Der Taylorreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die äußere Reaktorwand (1) und der Rotor (2) in die gleiche Richtung rotieren, wobei die Winkelgeschwindigkeit des Rotors (2) größer ist als die der  
25 äußeren Reaktorwand (1) oder daß die äußere Reaktorwand (1) stationär ist, und wogegen der Rotor (2) sich dreht.
3. Der Taylorreaktor nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß die äußere Reaktorwand (1) und der Rotor (2) über die gesamte  
30 Reaktorlänge hinweg - im Querschnitt gesehen - einen im wesentlichen kreisförmigen Umfang aufweisen.

4. Der Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß er vertikal gelagert ist, wobei das Reaktionsmedium entgegen der Schwerkraft bewegt wird.  
5
5. Der Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß der Rotor (2) zentrisch gelagert ist.
6. Der Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch  
10 gekennzeichnet, daß die Vorrichtung (7) für den Ablauf der Produkte an der höchsten Stelle des Reaktordeckels (4) angebracht ist.
7. Der Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch  
15 gekennzeichnet, daß die äußere Reaktorwand (1) und/oder der Rotor (2) geometrisch derart gestaltet ist oder sind, daß sich der Ringspalt in Durchflußrichtung verbreitert.
8. Der Taylorreaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß sich der  
20 Umfang der äußeren Reaktorwand (1) in Durchflußrichtung gesehen erhöht, wobei der Umfang des Rotors (2) konstant bleibt, sich ebenfalls erhöht oder sich verringert.
9. Der Taylorreaktor nach Anspruch 7 oder 8, dadurch gekennzeichnet, daß  
25 die äußere Reaktorwand (1) die Form eines einzelnen Kegelstumpfs hat oder aus mehreren Kegelstümpfen zusammengesetzt ist.
10. Der Taylorreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch  
30 gekennzeichnet, daß die äußere Reaktorwand (1) und/oder der Rotor (2) geometrisch derart gestaltet ist oder sind, daß der sich der Ringspalt in Durchflußrichtung verengt.

11. Der Taylorreaktor nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß sich der Umfang der äußeren Reaktorwand (1) in Durchflußrichtung gesehen verringert, wobei der Umfang des Rotors (2) konstant bleibt, sich erhöht und sich ebenfalls verringert.
- 5
12. Der Taylorreaktor nach Anspruch 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, daß die äußere Reaktorwand (1) die Form eines einzelnen Kegelstumpfs hat oder aus mehreren Kegelstümpfen zusammengesetzt ist.
- 10
13. Verfahren zur Umwandlung von Stoffen, bei dem die Viskosität  $v$  des Reaktionsmediums im Verlauf der Reaktion ansteigt, unter den Bedingungen der Taylor-Wirbelströmung, dadurch gekennzeichnet, daß man hierfür einen Taylorreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 bis 9 verwendet.
- 15
14. Das Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß in dem zuerst durchströmten Teilstück des Taylorreaktors eine erste Reaktion abläuft und in einem – in axialer Durchflußrichtung gesehen – zweiten oder weiteren Teilstück nach mindestens einer weiteren Vorrichtung (6) zur
- 20
- Zudosierung von Edukten und/oder Katalysatoren eine zweite, dritte, etc. Reaktion.
- 15.
- 25
- Verwendung des Verfahrens gemäß Anspruch 13 oder 14 für die Herstellung von Polymerisaten, Copolymerisaten, Blockcopolymerisaten, Pfpfpmischpolymerisaten, Polykondensations- und Polyadditionsprodukten, Kern-Schale-Latices, Polymerdispersionen, von Produkten durch polymeranaloge Reaktionen, wie die Veresterung, Amidierung oder Urethanisierung von Polymeren, welche Seitengruppen enthalten, die für solche Reaktionen geeignet sind, von olefinisch
- 30
- ungesättigten, mit Elektronenstrahlen oder ultraviolettem Licht härtbaren Materialien oder von Mesosphasen.

16. Verfahren zu Umwandlung von Stoffen, bei dem die Viskosität  $\nu$  des Reaktionsmediums im Verlauf der Reaktion absinkt, unter den Bedingungen der Taylor-Wirbelströmung, dadurch gekennzeichnet, daß  
5 man hierfür einen Taylorreaktor gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6 und 10 bis 12 verwendet.
17. Das Verfahren nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß in dem  
10 zuerst durchströmten Teilstück des Taylorreaktors eine erste Reaktion abläuft und in einem – in axialer Durchflußrichtung gesehen - zweiten oder weiteren Teilstück nach mindestens einer weiteren Vorrichtung (6) zur Zudosierung von Edukten und/oder Katalysatoren eine zweite, dritte, etc. Reaktion.
- 15 18. Verwendung des Verfahrens gemäß Anspruch 16 oder 17 für den Abbau hochmolekularer Stoffe.
19. Verwendung der nach dem Verfahren gemäß Anspruch 13 oder 14  
20 hergestellten Stoffe als Komponenten von Formteilen, Lacken, Klebstoffen und anderen Beschichtungsstoffen sowie von Folien.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/EP 99/04370

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 B01J19/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 B01J G03C

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 174 907 A (NAM P. SUH ET AL.) 20 November 1979 (1979-11-20) abstract column 1, line 15 - line 29 column 5, line 4 - line 18 column 5, line 61 - column 6, line 54 column 7, line 39 - line 56 column 8, line 1 - line 62 column 10, line 25 - line 37 figures 3-5	1,3,5, 13,15,16
A	---	2,4, 6-12,14, 17-19
	--- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 November 1999

Date of mailing of the international search report

23/11/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Stevnsborg, N

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/04370

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	GB 875 796 A (IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES) page 1, left-hand column, line 9 -right-hand column, line 48 page 1, right-hand column, line 70 -page 2, left-hand column, line 13 figures	1,3,5, 13-17,19
A	---	4,6-12
X	GB 1 358 157 A (AGFA-GEVAERT N.V.) 26 June 1974 (1974-06-26)  page 1, left-hand column, line 16 -page 2, right-hand column, line 122 page 3, left-hand column, line 56 -page 4, left-hand column, line 37 figures	1-3,5, 7-13,15, 16
A	---	4,6
X	WO 94 11096 A (EASTMAN KODAK COMPANY) 26 May 1994 (1994-05-26)  page 12, line 13 - line 22; figures 1-5 page 11, line 1 - line 14 page 6, line 30 -page 8, line 17 page 5, line 6 -page 6, line 7 page 4, line 8 - line 32 abstract	1,3,5,6, 13,14, 16,17
A	---	2,7,9, 12,15
X	US 5 618 580 A (KENTARO OSHIMA ET AL.) 8 April 1997 (1997-04-08) abstract column 3, line 39 -column 4, line 47 column 6, line 13 - line 55 figure 1	1,3-6, 13,16
X	EP 0 498 583 A (NIPPON PAINT CO., LTD.) 12 August 1992 (1992-08-12) cited in the application abstract figures 1,2	1,3-6, 13,15, 26,29
A	---	1,3-6, 13,15,16
A	GB 2 215 327 A (UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY) 20 September 1989 (1989-09-20) the whole document	
A	GB 799 039 A (THOMAS HEDLEY & CO. LIMITED)  the whole document	1,3,4,6, 13,14, 16,17
	---	
	-/--	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/04370

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	GB 2 103 229 A (A AND P CHEMICAL SAFETY SERVICE LIMITED) 16 February 1983 (1983-02-16) the whole document ---	1,3,5, 8-13,15, 16,19
A	WO 98 22524 A (BASF AKTIENGSELLSCHAFT) 28 May 1998 (1998-05-28) claims -----	1,15,18, 19

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/04370

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4174907 A	20-11-1979	CA 1034112 A DE 2625618 A FR 2332797 A GB 1555774 A IT 1061889 B JP 52038671 A	04-07-1978 30-12-1976 24-06-1977 14-11-1979 30-04-1983 25-03-1977
GB 875796 A		NONE	
GB 1358157 A	26-06-1974	NONE	
WO 9411096 A	26-05-1994	NONE	
US 5618580 A	08-04-1997	JP 6254384 A EP 0677326 A WO 9414530 A JP 6247712 A	13-09-1994 18-10-1995 07-07-1994 06-09-1994
EP 498583 A	12-08-1992	JP 4363303 A CA 2060441 A DE 69214312 D DE 69214312 T US 5340891 A US 5470539 A	16-12-1992 06-08-1992 14-11-1996 07-05-1992 23-08-1994 28-11-1995
GB 2215327 A	20-09-1989	NONE	
GB 799039 A		NONE	
GB 2103229 A	16-02-1983	NONE	
WO 9822524 A	28-05-1998	NONE	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

157/EP 99/04370

**A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES**  
IPK 6 B01J19/18

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

**B. RECHERCHIERTE GEBIETE**

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)  
IPK 6 B01J G03C

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

**C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN**

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 174 907 A (NAM P. SUH ET AL.) 20. November 1979 (1979-11-20) Zusammenfassung Spalte 1, Zeile 15 - Zeile 29 Spalte 5, Zeile 4 - Zeile 18 Spalte 5, Zeile 61 - Spalte 6, Zeile 54 Spalte 7, Zeile 39 - Zeile 56 Spalte 8, Zeile 1 - Zeile 62 Spalte 10, Zeile 25 - Zeile 37 Abbildungen 3-5	1,3,5, 13,15,16
A	---	2,4, 6-12,14, 17-19
	-/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

16. November 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23/11/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Beauftragter

Stevnsborg, N

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04370

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	GB 875 796 A (IMPERIAL CHEMICAL INDUSTRIES) Seite 1, linke Spalte, Zeile 9 -rechte Spalte, Zeile 48 Seite 1, rechte Spalte, Zeile 70 -Seite 2, linke Spalte, Zeile 13 Abbildungen	1,3,5, 13-17,19
A	---	4,6-12
X	GB 1 358 157 A (AGFA-GEVAERT N.V.) 26. Juni 1974 (1974-06-26)  Seite 1, linke Spalte, Zeile 16 -Seite 2, rechte Spalte, Zeile 122 Seite 3, linke Spalte, Zeile 56 -Seite 4, linke Spalte, Zeile 37 Abbildungen	1-3,5, 7-13,15, 16
A	---	4,6
X	WO 94 11096 A (EASTMAN KODAK COMPANY) 26. Mai 1994 (1994-05-26)  Seite 12, Zeile 13 - Zeile 22; Abbildungen 1-5 Seite 11, Zeile 1 - Zeile 14 Seite 6, Zeile 30 -Seite 8, Zeile 17 Seite 5, Zeile 6 -Seite 6, Zeile 7 Seite 4, Zeile 8 - Zeile 32 Zusammenfassung	1,3,5,6, 13,14, 16,17
A	---	2,7,9, 12,15
X	US 5 618 580 A (KENTARO OSHIMA ET AL.) 8. April 1997 (1997-04-08) Zusammenfassung Spalte 3, Zeile 39 -Spalte 4, Zeile 47 Spalte 6, Zeile 13 - Zeile 55 Abbildung 1	1,3-6, 13,16
X	EP 0 498 583 A (NIPPON PAINT CO., LTD.) 12. August 1992 (1992-08-12) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung Abbildungen 1,2	1,3-6, 13,15, 26,29
A	---	1,3-6, 13,15,16
A	GB 2 215 327 A (UNITED KINGDOM ATOMIC ENERGY AUTHORITY) 20. September 1989 (1989-09-20) das ganze Dokument	1,3,4,6, 13,14, 16,17
A	GB 799 039 A (THOMAS HEDLEY & CO. LIMITED)  das ganze Dokument	1,3,4,6, 13,14, 16,17
	---	
	-/--	

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

157/EP 99/04370

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	GB 2 103 229 A (A AND P CHEMICAL SAFETY SERVICE LIMITED) 16. Februar 1983 (1983-02-16) das ganze Dokument ---	1,3,5, 8-13,15, 16,19
A	WO 98 22524 A (BASF AKTIENGESellschaft) 28. Mai 1998 (1998-05-28) Ansprüche -----	1,15,18, 19

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04370

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4174907 A	20-11-1979	CA 1034112 A DE 2625618 A FR 2332797 A GB 1555774 A IT 1061889 B JP 52038671 A	04-07-1978 30-12-1976 24-06-1977 14-11-1979 30-04-1983 25-03-1977
GB 875796 A		KEINE	
GB 1358157 A	26-06-1974	KEINE	
WO 9411096 A	26-05-1994	KEINE	
US 5618580 A	08-04-1997	JP 6254384 A EP 0677326 A WO 9414530 A JP 6247712 A	13-09-1994 18-10-1995 07-07-1994 06-09-1994
EP 498583 A	12-08-1992	JP 4363303 A CA 2060441 A DE 69214312 D DE 69214312 T US 5340891 A US 5470539 A	16-12-1992 06-08-1992 14-11-1996 07-05-1992 23-08-1994 28-11-1995
GB 2215327 A	20-09-1989	KEINE	
GB 799039 A		KEINE	
GB 2103229 A	16-02-1983	KEINE	
WO 9822524 A	28-05-1998	KEINE	